

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-033969

(43)Date of publication of application : 10.02.1998

(51)Int.Cl.

B01J 2/02

C30B 29/06

C30B 30/08

(21)Application number : 08-211883

(71)Applicant : NAKADA JIYOUSUKE

(22)Date of filing : 22.07.1996

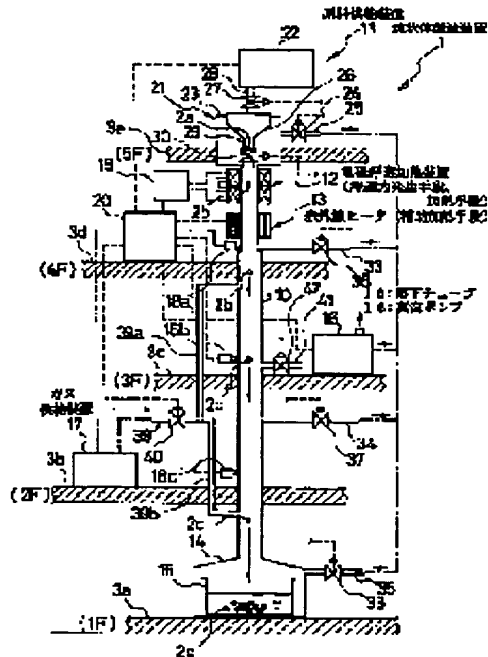
(72)Inventor : NAKADA JIYOUSUKE

## (54) MANUFACTURE OF SPHERICAL BODY OF INORGANIC MATERIAL AND MANUFACTURING APPARATUS THEREFOR

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To suppress the formation of projected parts in a part of the surface of a spherical body and lessen the inner strain in the spherical body by releasing heat, heating the surface part of a raw material molten liquid by an auxiliary heating means, and after that cooling the raw material at the time of dropping the raw material molten liquid in a dropping tube.

**SOLUTION:** When electricity is applied to an electromagnetic suspension heating apparatus 12 and a raw material body 2a is supplied to a dropping tube 10 while opening a shutter 30, the raw material body is suspended in floating state for a short time and heated and becomes a raw material molten liquid 2b. Next, electricity supply to the apparatus 12 is stopped, the raw material molten liquid 2b starts dropping in the tube 10 and is cooled by radiation cooling until it reaches the upper end level of an infrared heater 13 and releases heat. At that time, the raw material molten liquid 2b becomes truly spherical state. After that, only the surface of the raw material molten liquid 2b of the heater 13 is heated and the raw material molten liquid 2b is solidified to be a spherical crystal 2c with a truly spherical shape. Finally, the spherical crystal 2c drops to silicon oil in a silicon oil tank 15 and is completely cooled. In this way, a spherical body in which components are uniformly distributed can be manufactured.



### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

17.08.1998

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-33969

(43) 公開日 平成10年(1998) 2月10日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
B 0 1 J 2/02			B 0 1 J 2/02	A
C 3 0 B 29/06	5 0 3		C 3 0 B 29/06	5 0 3
30/08			30/08	

審査請求 未請求 請求項の数8 F D (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平8-211883

(22) 出願日 平成8年(1996) 7月22日

(71) 出願人 393024061

中田 仗祐

京都府城陽市久世上大谷112番地の17

(72) 発明者 中田 仗祐

京都府城陽市久世上大谷112番地の17

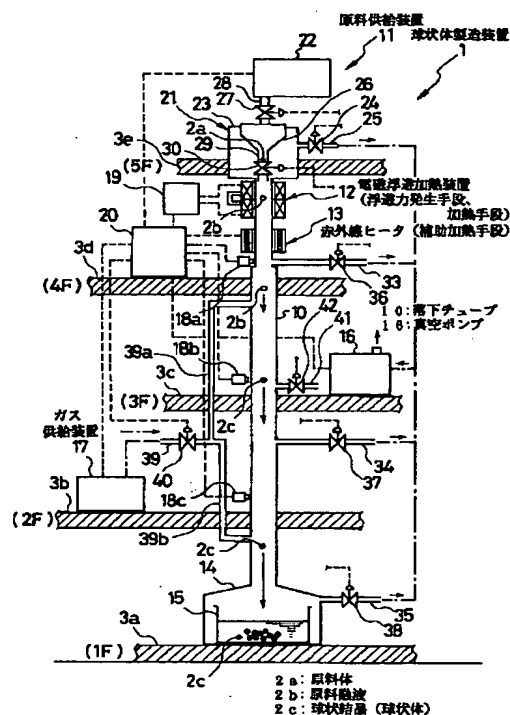
(74) 代理人 弁理士 岡村 俊雄

(54) 【発明の名称】 無機材料製の球状体の製造方法及びその製造装置

(57) 【要約】

【課題】 無機材料製の原料体を溶融させ自由落下させて球状体に凝固させるとき、原料融液の表面部から凝固が始まり内部が遅れて凝固するため、凝固時の体積変化により球状体の表面部に突起部や凹部が形成され、真球状の球状体にすることが困難で、内部歪みも大きくなり、空気粒の混入も生じやすい。

【解決手段】 原料体を落下チューブ内の真空中又は所定のガス中で電磁浮遊加熱してから自由落下させ、落下初期に放射冷却により放熱させ、その後赤外線ヒータで原料融液の表面部のみを加熱して内部よりも表面部の温度を高くし、その後落下中に放熱させて凝固させる。この場合、凝固点付近まで温度低下したときには、原料融液の内部と表面部の温度がほぼ一様化しているため、原料融液の内部と表面部から同時に、又は表面部よりも早く内部から凝固するので、突起部や凹部の無い真球状の球状体を製造することができる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 無機材料からなる原料体を浮遊力発生手段により真空中又は所定のガス中に浮遊させた状態で加熱手段により加熱して熔融させる第1工程と、次に原料融液を鉛直姿勢にした落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら融液状態のまま放熱させる第2工程と、次に前記原料融液を前記落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら、補助加熱手段により原料融液の表面部を加熱する第3工程と、次に前記原料融液を前記落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら冷却して原料融液の表面張力の作用で球状体に凝固させる第4工程と、次に前記球状体を前記落下チューブの下端に臨む冷却液槽の冷却液内に収容する第5工程と、を備えたことを特徴とする無機材料製の球状体の製造方法。

【請求項2】 前記無機材料がシリコンであることを特徴とする請求項1に記載の無機材料製の球状体の製造方法。

【請求項3】 相互に異なる種類の無機材料からなる複数の原料体を、浮遊力発生手段により真空中又は所定のガス中に接触状に浮遊させた状態で加熱手段により加熱して一体的に熔融させる第1工程と、次に原料融液を鉛直姿勢にした落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら融液状態のまま放熱させる第2工程と、次に前記原料融液を前記落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら、補助加熱手段により原料融液の表面部を加熱する第3工程と、次に前記原料融液を前記落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら冷却して原料融液の表面張力の作用で球状体に凝固させる第4工程と、次に前記球状体を前記落下チューブの下端に臨む冷却液槽の冷却液内に収容する第5工程と、を備えたことを特徴とする無機材料製の球状体の製造方法。

【請求項4】 前記相互に異なる種類の無機材料がシリコンとゲルマニウムであることを特徴とする請求項3に記載の無機材料製の球状体の製造方法。

【請求項5】 無機材料からなる原料体を落下チューブ内の真空中又は所定のガス中で浮遊状態で加熱し、その原料融液を落下チューブ内を自由落下させながら凝固させて球状体を製造する装置において、鉛直姿勢の落下チューブと、前記落下チューブ内へその上端から原料体を供給する原料体供給手段と、前記落下チューブの上端部又はその付近内で原料体を浮遊させた状態で加熱して原料融液にする浮遊加熱手段と、

前記浮遊加熱手段の下側に所定距離以上離隔して配設され、落下チューブ内を落下中の原料融液の表面部を加熱するアフターヒータと、を備えたことを特徴とする無機材料製の球状体の製造装置。

【請求項6】 前記落下チューブ内を真空ポンプを介して真空状態にする真空化手段を設けたことを特徴とする請求項5に記載の無機材料製の球状体の製造装置。

【請求項7】 無機材料の種類に応じた所定のガスを落下チューブ内に供給するとともに、落下チューブ内に原料融液の落下方向へほぼ同速で流れるガス流を形成し且つ落下チューブ内に球状体の落下方向と反対方向へ流れるガス流を形成するガス供給手段を設けたことを特徴とする請求項6に記載の無機材料製の球状体の製造装置。

【請求項8】 前記落下チューブの下端に臨み、その下端外へ落下した球状体を冷却液内に収容する冷却液槽を設けたことを特徴とする請求項7に記載の無機材料製の球状体の製造装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、無機材料製の球状体の製造方法及びその製造装置に関し、特に半導体、超電導体、磁性体、誘電体、合金、ガラス等の無機材料の原料体を浮遊状態で熔融後落下チューブ内を自由落下させながら表面張力の作用で球状体に凝固させる技術に関し、無機材料製の球状体を比較的簡単に経済的に製造する技術に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 従来、微小重力環境下で種々の無機材料を熔融させてから球状体に凝固させる実験が行われてきた。そのなかには、球状結晶を作る実験も行われた。微小重力環境下において、容器を用いない溶融方法として、電磁浮遊加熱、静電浮遊や音波浮遊装置にハロゲンランプ等の放射光加熱炉を組み合わせた技術が用いられて来た。しかし、このような実験は地上ではなく、地球周回軌道上の人工衛星やスペースシャトルを利用して長時間の微小重力環境下で行われたので、多大の費用と時間がかかるほか、実施上の制約もきびしく、実験回数は限定される。従って、学術的研究や実験に限られ、上述の無機材料の球状結晶を経済的に短時間に繰り返し大量に生産するのには適していない。

【0003】 一方、10秒以下の短時間の微小重力環境は、従来の地上に設けたドロップチューブやショットタワー方式の実験装置によって実現できることは公知である。例えば、米国のNASAのドロップチューブ式実験装置においては、地上にドロップチューブが装備され、その上端部のベルジャーに電磁浮遊加熱装置が交換可能に装備され、種々の無機材料の試料を容器に入れずに電磁浮遊加熱して溶融し、ドロップチューブの真空中を自由落下させながら微小重力下に球状体に凝固させる。

【0004】また、ショットタワーを用いてシリコンの球状結晶を作った例が発表されている〔「Development and Evaluation of the Texas Instruments Solar Energy System」 16th IEEE PVSC Proceedings P.257 ~P.260(1982)〕。この発表論文によれば、ショットタワーの上端に装備した小さなノズルから、シリコンの融液を少量づつ噴射し、ショットタワー内の不活性ガス中を自由落下させて、シリコンの球状結晶を製造する。米国特許第4,021,323号公報にも、前記と同様にショットタワーの上端に装備した小さなノズルから、シリコンの融液を少量づつ噴射し、ショットタワー内を自由落下させてシリコンの球状結晶を製造する技術が記載されている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】前記のように、シリコンの融液をノズルから噴射させてシリコンの球状結晶を製造する場合には、ノズルからシリコン融液に不純物が溶け込む可能性が高く、高純度のシリコン球状結晶を製造するのに適していない。このことはシリコン以外の無機材料製の球状結晶や球状体を製造する場合も同様である。但し、NASAのドロップチューブ式実験装置のように、電磁浮遊加熱装置を適用すれば、シリコン融液を容器に接触させないので、シリコン融液に不純物が溶け込むことはない。

【0006】他方、シリコンの融液を真空中又は不活性ガス中を自由落下させて凝固させる場合、シリコン融液の表面から放熱するためシリコン融液の表面側から凝固が開始する。しかし、シリコンは凝固時に体積膨張するため、表面側よりも遅れて融液の内部が凝固するときシリコン融液の一部が表面側の一個所に膨出して尻尾状の突起部が形成されるため、真球状のシリコン球状結晶を形成できない。凝固時に体積収縮する無機材料の場合には、前記とは反対に、凝固した球状体の表面部に凹部が形成される可能性がある。また、シリコン融液の表面側が先に凝固すると、シリコン原料体に付着していた気泡が球状体の内部に混入し易くなる。

【0007】しかも、シリコン融液が表面側から凝固することから、凝固後の球状結晶の内部歪みも大きくなる。シリコンの球状結晶を製造する場合には、前記内部歪みは別途焼鈍処理により除去できる。しかし、球状体を形成後熱処理できない無機材料の場合には、球状体の内部歪みを除去することが難しい。何れにしても、球状結晶や球状体の品質を高める為には、球状結晶や球状体の形成段階から内部歪みを極力小さくすることが望ましい。

【0008】本発明の目的は、無機材料製の球状体を製造する際に、球状体の表面の一部に尻尾状の突起部が形成されるのを抑制でき、球状体の内部歪みを小さくすることができ、球状体の内部への気泡の混入を防止できるような球状体の製造方法及びその製造装置を提供することである。

【0009】

【課題を解決するための手段】請求項1の無機材料製の球状体の製造方法は、無機材料からなる原料体を浮遊力発生手段により真空中又は所定のガス中に浮遊させた状態で加熱手段により加熱して溶融させる第1工程と、次に原料融液を鉛直姿勢にした落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら融液状態のまま放熱させる第2工程と、次に前記原料融液を前記落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら、補助加熱手段により原料融液の表面部を加熱する第3工程と、次に前記原料融液を前記落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら冷却して原料融液の表面張力の作用で球状体に凝固させる第4工程と、次に前記球状体を前記落下チューブの下端に臨む冷却液槽の冷却液内に收容する第5工程とを備えたことを特徴とするものである。

【0010】前記浮遊力発生手段としては、電磁浮遊加熱装置、静電浮遊装置、音波浮遊装置等を適用でき、前記加熱手段としては、電磁浮遊加熱装置、赤外線ヒータ、電気ヒータ、レーザー光ヒータ、ハロゲンランプ等を適用できる。所定のガスとしては、アルゴンガス、ヘリウムガス、窒素ガス等の不活性ガス、または、酸素ガスあるいは酸素ガスを含む窒素ガス等の酸化性ガスを適用できる。無機材料は、半導体、超電導体、磁性体、誘電体、合金、ガラス等の何れかの材料である。

【0011】最初の第1工程では、無機材料の微小な塊状の原料体をパーツフィード等で浮遊力発生手段に供給し、その浮遊力発生手段により原料体を真空中又は所定のガス中に浮遊させた状態で加熱手段により加熱して溶融させる。このように、原料体を浮遊状態にして溶融させるため、原料融液が容器に接触することがないため、原料融液に不純物が溶け込むことがない。次の第2工程では、原料融液を鉛直姿勢にした落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら融液状態のまま放熱させる。

【0012】原料融液を落下チューブ内を自由落下させるため、原料融液は微小重力状態に入り、原料融液の表面張力の作用で球状になり、重力や熱対流の影響が無い状態成分が均一に分布した融液となる。真空中を落下させる場合、輻射により原料融液の表面から放熱し、所定のガス中を落下させる場合、輻射と伝熱により原料融液の表面から放熱する。前記原料融液の表面の凝固が発生しない程度もしくは部分的にしか凝固が発生しない程度に放熱させることにより、原料融液全体の温度低下を図る。但し、原料融液の表面側から放熱するため、原料融液の内部よりも表面側の方が低温になる。

【0013】次の第3工程では、原料融液を落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら、補助加熱手段により原料融液の表面部を加熱する。この補助加熱手段としては、表面部のみを加熱する為、赤外線

ヒータを適用することが望ましく、原料融液の内部の温度よりも表面部の温度が高くなるように加熱する。

【0014】次の第4工程では、原料融液を、落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら冷却して半導体融液の表面張力の作用で球状体に凝固させる。原料融液が、自由落下しながら凝固するため表面張力の作用で球状を保持しつつ球状体に凝固する。このとき、原料融液は表面部から放熱するけれども、原料融液の内部の温度が表面部の温度と同等または表面部の温度よりも低くなっているため、原料融液の内部から、或いは、内部と表面部の両方から凝固が開始する。それ故、凝固時に体積膨張する無機材料の場合でも球状体の表面の一部に突起部が形成されるのを効果的に抑制することができ、凝固時に体積収縮する無機材料の場合でも球状体の表面の一部に凹部が形成されるのを効果的に抑制することができ、球状体の内部歪みを小さくすることができる。また、球状体内に気泡が混入しにくくなる。しかも、凝固開始の起点となる種結晶の無い状態から凝固するため、過冷却状態での凝固が生じる。無機材料がガラスである場合、過冷却凝固により全く新しいガラスの球状体となる。

【0015】特に、無機材料がシリコンである場合、シリコンは凝固するときには、体積膨張するため、原料融液の表面部から凝固し始めると、原料融液の内部が凝固する際に融液の一部が表面部に突出して突起部が形成されることになるが、本発明では、そのような突起部が形成されることはなく、仮に突起部が形成されるとしても別途焼鈍処理の際に消滅する位の極く小さな突起部が形成されるだけである。

【0016】次の第5工程では、球状体を落下チューブの下端に臨む冷却液槽の冷却液内に収容する。この冷却液としては、球状体に不純物を溶け込ませることのない液体（例えば、シリコンオイル）を適用する。このように落下してきた球状体を冷却液内に収容することで、緩衝を図り球状体を十分に冷却することができる。

【0017】請求項2の無機材料製の球状体の製造方法は、請求項1の発明において、前記無機材料がシリコンであることを特徴とするものである。前記請求項1の欄において説明したとおり、シリコン球状結晶の表面部に突起が形成されるのを抑制でき、球状結晶の内部歪みを小さくすることができる。

【0018】請求項3の無機材料製の球状体の製造方法は、相互に異なる種類の無機材料からなる複数の原料体を、浮遊力発生手段により真空中又は所定のガス中に接触状に浮遊させた状態で加熱手段により加熱して一体的に熔融させる第1工程と、次に原料融液を鉛直姿勢にした落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら融液状態のまま放熱させる第2工程と、次に前記原料融液を前記落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら、補助加熱手段により原料融液の表

面部を加熱する第3工程と、次に前記原料融液を前記落下チューブ内の真空中又は所定のガス中を落下させながら冷却して原料融液の表面張力の作用で球状体に凝固させる第4工程と、次に前記球状体を前記落下チューブの下端に臨む冷却液槽の冷却液内に収容する第5工程とを備えたことを特徴とするものである。

【0019】この製造方法は、基本的に請求項1の製造方法と基本的に同様であるが、第1工程において、相互に異なる種類の無機材料からなる複数の原料体を適用する点で異なっており、第2工程～第5工程については、請求項1と同様である。即ち、第1工程において相互に異なる種類の無機材料からなる複数の原料体を、浮遊力発生手段により真空中又は所定のガス中に接触状に浮遊させた状態で加熱手段により加熱して一体的に熔融させる。複数の原料体の重量比率は、同一とは限らず適宜設定される。前記無機材料、浮遊力発生手段、加熱手段については請求項1と同様であるので説明を省略する。この製造方法によれば、複数の種類の異なる無機材料からなる球状体であって成分が均一に分布した球状体を製造することができ、球状体の表面部に突起部が形成されるのを抑制でき、球状体の内部歪みを小さくすることができる。

【0020】請求項4の無機材料製の球状結晶の製造方法は、請求項3の発明において、前記相互に異なる種類の無機材料がシリコンとゲルマニウムであることを特徴とするものである。シリコンとゲルマニウムは全率固溶体を形成するので、組成比を任意に選択することにより、所望の混晶比を有するシリコン・ゲルマニウム混晶半導体の球状結晶を製造することができる。

【0021】請求項5の無機材料製の球状体の製造装置は、無機材料からなる原料体を落下チューブ内の真空中又は所定のガス中で浮遊状態で加熱し、その原料融液を落下チューブ内を自由落下させながら凝固させて球状体を製造する装置において、鉛直姿勢の落下チューブと、前記落下チューブ内へその上端から原料体を供給する原料体供給手段と、前記落下チューブの上端部又はその付近内で原料体を浮遊させた状態で加熱して原料融液にする浮遊加熱手段と、前記浮遊加熱手段の下側に所定距離以上離隔して配設され、落下チューブ内を落下中の原料融液の表面部を加熱するアフターヒータとを備えたものである。

【0022】前記無機材料は、半導体、超電導体、磁性体、合金、ガラス等の何れか1つの材料又は複数の材料であり、原料体としては、1種類の材料の原料体、複数の材料の原料体、1個の原料体、複数個の原料体等種々形態の原料体を適用できる。所定のガスについては請求項1と同様である。前記浮遊加熱手段としては、電磁浮遊加熱装置、静電浮遊装置と加熱装置、音波浮遊装置と加熱装置、の何れかを適用でき、前記加熱装置としては、電気ヒータ、赤外線ヒータ、ハロゲンランプヒー

タ、レーザ光ヒータ等の種々の加熱手段を適用できる。前記アフターヒータとしては、赤外線ヒータ、ハロゲンランプヒータ、レーザ光ヒータ、電気ヒータ等の種々のヒータを適用できる。

【0023】原料供給手段が落下チューブ内へその上端から原料体を供給すると、浮遊加熱手段は、落下チューブの上端部又はその付近内で原料体を浮遊させた状態で加熱して原料融液にする。原料融液は浮遊状態であるので、容器に接触することがないから原料融液に不純物が溶け込むことがない。アフターヒータは、浮遊加熱手段の下側に所定距離以上離隔して配設されているため、原料融液が落下チューブ内をアフターヒータのレベルまで落下する間に原料融液が放射冷却等により放熱して、原料融液の全体の温度が低下するものの、原料融液の内部よりも表面部の方が低温になる。

【0024】次に、アフターヒータによりその原料融液の表面部が加熱されるため、原料融液の内部よりも表面部の方が高温になる。その原料融液がアフターヒータを通過してから原料融液の落下中に原料融液の表面部から放熱していくため、凝固点まで温度低下したとき、原料融液の内部の温度が表面部の温度と同等又は表面部の温度よりも低くなっているため、原料融液の内部から、或いは、内部と表面部の両方から凝固が開始する。その結果、請求項1に説明した作用と同様の作用を奏する。

【0025】請求項6の無機材料製の球状体の製造装置は、請求項5の発明において、前記落下チューブ内を真空ポンプを介して真空状態にする真空化手段を設けたものである。落下チューブ内を真空状態にして球状体を製造する際には、真空化手段を作動させて落下チューブ内を真空状態にする。

【0026】請求項7の無機材料製の球状体の製造装置は、請求項6の発明において、無機材料の種類に応じた所定のガスを落下チューブ内に供給するとともに、落下チューブ内に原料融液の落下方向へほぼ同速で流れるガス流を形成し且つ落下チューブ内に球状体の落下方向と反対方向へ流れるガス流を形成するガス供給手段を設けたものである。例えば、ガラス製の球状体や酸化物高温超電導体製の球状体を製造するような場合には、真空化手段を停止させ、酸化ガスまたは酸素ガスを含む窒素ガスを落下チューブ内に供給し、そのガス中で球状体を製造することになる。その場合、ガス供給手段により、落下チューブ内にガスを供給するとともに、落下チューブ内に原料融液の落下方向へほぼ同速で流れるガス流を形成し且つ落下チューブ内に球状体の落下方向と反対方向へ流れるガス流を形成する。

【0027】落下チューブ内で数100～2000 $\mu$ m程度の小径の原料融液は、極く短時間で凝固するが、凝固前の原料融液の落下方向へほぼ同速で流れるガス流を形成するため、ガス流から凝固中の原料融液に摩擦力が殆ど作用せず、原料融液は真球状に凝固する。そして、

凝固後の球状体の落下方向と反対方向へ流れるガス流を形成するため、ガス流と球状体との接触度合いが高くなり、ガスと球状体との反応や球状体の冷却が促進される。

【0028】請求項8の無機材料製の球状体の製造装置は、請求項7の発明において、前記落下チューブの下端に臨み、その下端外へ落下した球状体を冷却液内に收容する冷却液槽を設けたものである。落下チューブの下端外へ落下した球状体を冷却液槽の冷却液内に收容するため、球状体が衝撃で損傷するのを防止するとともに、球状体を冷却することができる。

【0029】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態について図面を参照しながら説明する。最初に、本発明に適用する無機材料製の球状体（直径数100～2000 $\mu$ m）を製造する球状体製造装置について説明する。図1に示すように、球状体製造装置1は、直径5～10cmで高さ約14mの鉛直の落下チューブ10と、落下チューブ10の上端部の外側に配置した電磁浮遊加熱装置12と、アフターヒータとしての赤外線ヒータ13（補助加熱手段）と、落下チューブ10の上端に原料体2aを1個ずつ供給する原料供給装置11と、落下チューブ10の下端に連なる收容部14内に收容されて落下チューブ10の下端に臨むシリコンオイル槽15と、落下チューブ10内の空気を吸引する真空ポンプ16と、ガス供給装置17と、配管系及びバルブ類と、落下チューブ10内を落下中の原料融液2bや球状結晶2c（球状体）を撮影する高速度カメラ18a～18cと、これらの機器を制御する制御ユニット20等で構成されている。尚、工場の1階～5階のフロア3a～3eも図示してある。

【0030】原料供給装置11は、落下チューブ10の上端に接続された供給器21と、多数の所定サイズの小塊状の原料体2aを收容し且つ供給器21に1個ずつ供給するパーツフィーダ22とを備え、パーツフィーダ22は、原料体2aを予熱するとともに原料体2aの表面の空気を抜気するように構成してある。供給器21のケース23は、電磁開閉弁24を有する吸引管25で真空ポンプ16に接続され、ケース23内の受入器26は、電磁開閉シャッター27を有する通路28でパーツフィーダ22に接続され、受入器26の出口通路29には電磁開閉シャッター30が設けられ、受入器26には複数の微小孔を介してケース23内の真空が導入される。

【0031】球状体製造装置1の稼働中には、電磁開閉弁24は開かれて供給器21内は真空状態である。パーツフィーダ22から供給器21に1個の原料体2aを供給する場合、電磁開閉シャッター30を閉じ、電磁開閉シャッター27を開いて受入器26内に原料体2aを供給し、その後電磁開閉シャッター27を閉じる。原料供給装置11は、所定時間（例えば、1秒）おきに1個の

原料体2 aを供給器2 1へ供給可能になっている。

【0032】落下チューブ10内の空気を吸引する吸引管33～35には、電磁開閉弁36～38が装備されており、これら吸引管33～35は真空ポンプ16に接続されている。無機材料の種類によっては、落下チューブ10内に所定のガス（不活性ガス、酸化性ガス等）を流すことができるように、ガス供給装置17とそのガス供給装置17から延びるガス供給管39が設けられ、ガス供給管39から分岐した分岐管39 aは落下チューブ10の上段部に接続され、ガス供給管39から分岐した分岐管39 bは落下チューブ10の下段部に接続され、ガス供給管39には電磁開閉弁40が装備されている。落下チューブ10の中段部に接続されたガス排出管41が大気開放され、このガス排出管41には電磁開閉弁42が装備されている。

【0033】ガス供給装置17から所定のガスを供給する場合には、落下チューブ10の上半部内ではガスは原料融液2 bと同方向へほぼ同速で流れるので、原料融液2 bにガスから摩擦力が作用しない。落下チューブ10の下半部内ではガスは球状結晶2 cと反対側へ流れるので、球状結晶2 cとガスとの接触度合いが高くなる。但し、落下チューブ10内を真空中に維持する場合には、ガス供給装置17は停止し、電磁開閉弁40、42は閉じている。

【0034】図2に示すように、電磁浮遊加熱装置12は、上部コイル45と、下部コイル46と、これらコイル45、46に逆方向の等しい高周波電流を供給する高周波電流発生装置19（図1参照）等で構成され、上部コイル45で上向きの磁力線が発生し、下部コイル46で下向きの磁力線が発生し、原料体2 aが導体や半導体の無機材料で構成されている場合、高周波数で変化する磁力線により原料体2 aに誘導電流が発生し、原料体2 aが上部コイル45と下部コイル46の中間位置（図示の位置）にあるとき、誘導電流に磁力線から作用する上向きの力と下向きの力とが均衡するため原料体2 aが浮遊状態を保持し、誘導電流が原料体2 a中を流れるときの発熱作用で原料体2 aが加熱される。

【0035】こうして、原料体2 aが加熱されて溶融し原料融液2 bになってから両コイル45、46への高周波電流を遮断すると、原料融液2 bが赤外線ヒータ13の方へ自由落下する。この自由落下により、原料融液2 bは、 $10^{-5}$  Gの微小重力状態になり、表面張力の作用で真球状になる。

【0036】前記赤外線ヒータ13は、原料融液2 bの表面部のみを少し加熱する為のものであり、電磁浮遊加熱装置12との間に球状体2 cの大きさと材料とに応じて設定される所定距離以上離して落下チューブ10の外側に環状に配置され、高さ位置を微調節可能に取付けられている。この赤外線ヒータ13は、赤外線放射セラミックスからなる円筒状のヒータ本体47を有し、このヒ

ータ本体47へ供給する電流を制御することで、加熱能力を精密に制御することができる。原料融液2 bは、自転しながら落下してくるため、赤外線ヒータ13により原料融液2 bの表面部のみが一様に加熱される。尚、図2には、電磁浮遊加熱装置12と赤外線ヒータ13で加熱される原料体2 a又は原料融液2 bの全体のマクロ的温度を図示してあり、温度 $T_o$ は融解点（凝固点）である。

【0037】次に、前記球状体製造装置1を用いて、無機材料としてシリコンを適用し、シリコンの原料体2 aを供給して1個のシリコンの球状結晶2 cを製造する方法について説明する。まず、最初の準備段階において、電磁開閉弁40、42が閉じられ、電磁開閉弁24、36～38が開かれ、真空ポンプ16が作動されて、落下チューブ10内は所定の真空状態にされる。原料供給装置11の受入器26には1個の原料体2 aが収容され、赤外線ヒータ13には予め設定された所定の電流が通電される。

【0038】次に、電磁浮遊加熱装置12に通電され、電磁開閉シャッター30が開かれて原料体2 aが落下チューブ10内に供給され、その原料体2 aは電磁浮遊加熱装置12により所定の微小時間の間浮遊状態に保持して加熱され、溶融して原料融液2 bになる。このときの原料融液2 bの温度分布は、図3（a）に示すように、原料融液2 bの内部と表面部とがほぼ一樣になる。

【0039】次に、電磁浮遊加熱装置12への通電が遮断されると、原料融液2 bが落下チューブ10の真空中を落下し始める。最初原料融液2 bの落下速度は低速であり、原料融液2 bが赤外線ヒータ13の上端のレベルまで落下する微小時間の間に放射冷却されて放熱する。このとき、原料融液2 bの表面部から放熱するため、原料融液2 bの内部よりも表面部の方が低温になる（図3（b）の温度分布参照）。この落下開始後には、原料融液2 bは微小重力状態になるため、原料融液2 bの表面張力の作用で真球状になる。

【0040】次に、落下チューブ10内のうちの赤外線ヒータ13の内部を落下中に、原料融液2 bの表面部のみが加熱され、原料融液2 bの温度分布は図3（c）に示すように、原料融液2 bの内部よりも表面部の方が高温になる。次に、落下チューブ10の真空中を赤外線ヒータ13の下方へ落下しながら、原料融液2 bは放射冷却により放熱し、原料融液2 bの表面張力の作用で真球状の球状結晶2 cに凝固する。

【0041】前記赤外線ヒータ13を通過後、放射冷却が進行して、凝固点 $T_o$ 近くまで温度低下した状態における原料融液2 bの温度分布は、図3（d）に実線又は2点鎖線で示すようになる。即ち、図3（c）に示す温度分布状態から放射冷却により表面部から冷却される結果、原料融液2 bの内部と表面部の温度がほぼ一樣になる。このように、図3（d）に実線で示す温度分布の状

態から原料融液2bが凝固する場合には、原料融液2bの内部と表面の両方から同時進行的に凝固するので、シリコンの原料融液2bが凝固中に体積膨張しても、球状結晶2cの表面部に突起部が形成されることがなく、球状結晶2cの内部歪みも非常に小さくなる。また、図3(d)に2点鎖線で示す温度分布の状態から原料融液2bが凝固する場合には、原料融液2bの内部から凝固が開始し、表面部が遅れて凝固するため、球状結晶2cの表面部に突起部が形成されることがなく、球状結晶2cの内部歪みも非常に小さくなる。

【0042】その後、落下チューブ10内のほぼ中段部のレベルで凝固が完了した球状結晶2cは、シリコンオイル槽15内のシリコンオイル内へ落下し、そこに収容されて完全に冷却される。シリコンオイル内へ落下するとき、シリコンオイルで緩衝されるため、球状結晶2cが損傷することがない。尚、多数の球状結晶2cを製造後には図示外の開閉扉を開いてシリコンオイル槽15が外部へ取り出される。尚、前記のように球状結晶2cの内部歪みが小さくなるものの、球状結晶2cの全体が単結晶にならない場合には、別途焼鈍処理することで球状結晶2cの全体を単結晶にすることができる。

【0043】以上説明した球状体製造装置1及び球状体製造方法によれば、赤外線ヒータ13を介して原料融液2bの温度分布を図3(d)のように均一化してから球状結晶2cに凝固させるため、シリコンの原料融液2bが凝固する際に膨張しても、球状結晶2cの表面部に突起部が形成されるのを確実に抑制し、突起部の無い真球状の球状結晶2cを製造することができる。そして、仮に突起部が形成されるとしても、非常に小さな焼鈍処理の際に消滅する位の突起部が形成されるだけである。また、原料融液2bの表面部が内部よりも先に凝固しないため、原料体2aの表面に付着した気泡が球状結晶2cに混入しなくなる。また、原料融液2bは微小重力状態下に凝固して球状結晶2cになるため、熱対流、浮力、沈降の影響を受けることなく成分が均一に分布した球状結晶2cとなる。また、原料融液2bが凝固する際に種結晶の無い状態で凝固するため、過冷却状態から凝固することになる。

【0044】前記落下チューブ10の高さは約14mであるので、原料融液2bの落下時間は約1.7秒間であり、この約1.7秒の間に凝固できるサイズの球状結晶2cを製造することができる。但し、落下チューブ10の長さを一層大きくすれば、一層大きな球状結晶2cを製造することができる。尚、前記の例は、シリコンの球状結晶2cを製造する場合を例として説明したが、シリコンに限らず、種々の無機材料(半導体、超電導体、誘電体、磁性体、合金、ガラス等)であって誘導加熱可能な無機材料製の球状結晶や球状体を製造することができる。そして、凝固の際に体積収縮する無機材料の場合にも、球状体2cの表面部に凹部が形成されず、真球状の

球状体になる。しかも、原料供給装置11は所定時間おきに原料体2aを落下チューブ10内へ供給できるように構成してあるため、無機材料製の球状結晶や球状体を能率的に量産することができる。

【0045】ガラス製または酸化物高温超電導体(例えば、 $YBa_2Cu_3O_2$ )製の球状体を製造するような場合には、真空ポンプ16を停止し、電磁開閉弁24, 36~38を閉じ、電磁開閉弁40, 42を開き、ガス供給装置17から、酸素ガスまたは酸素ガスを含む窒素ガスを落下チューブ10に供給し、そのガス中で原料体を加熱溶解させ、そのガス中を原料融液2bを自由落下させつつ凝固させる。また、球状結晶2cの表面部に種類の異なる無機材料をドーピングするような場合には、ガス供給装置17から供給する不活性ガスとともにドーピングの為の無機材料のガスを落下チューブ10内へ供給し、そのガス中で原料体を加熱溶解させ、そのガス中を原料融液2bを自由落下させつつ凝固させることもできる。

【0046】絶縁体の無機材料(例えば、ガラス)の場合には、電磁浮遊加熱装置12により誘導加熱することができないので、電磁浮遊加熱装置12の代わりに、静電浮遊装置と加熱装置、又は音波浮遊装置と加熱装置を適用すればよい。尚、その加熱装置としては、電気ヒータ、赤外線ヒータ、ハロゲンランプヒータ、レーザ光ヒータ等の種々の加熱手段を適用可能である。他方、無機材料の種類と関係無しに、前記赤外線ヒータ13の代わりに、電気ヒータ、ハロゲンランプヒータ、レーザ光ヒータ等の種々のヒータを適用可能である。

【0047】次に、前記の実施形態を部分的に変更した別実施形態について説明する。図4に示すように、この無機材料製の球状体製造装置1Aは、2種類の異なる無機材料製の原料体2a, 2Aを落下チューブ10内に供給し、電磁浮遊加熱装置12により一体的に溶解して2種類の無機材料製からなる球状結晶や球状体を製造する装置である。原料供給装置11A以外の構成は、前記実施形態のものと同様であるので、同一の構成要素に同一符号を付して説明を省略する。

【0048】原料供給装置11Aは、パーツフィーダ22の他に、パーツフィーダ22Aを有し、このパーツフィーダ22Aは電磁開閉シャッター27Aを有する通路28Aを介して供給器21の受入器26に接続され、このパーツフィーダ22Aからも受入器26に原料体2Aを供給可能に構成してある。パーツフィーダ22からはシリコンの原料体2aが受入器26に供給され、パーツフィーダ22Aからはゲルマニウムの原料体2Aが受入器26に供給される。但し、原料体2aと原料体2Aは所定の組成比となるように夫々の重量が設定されている。

【0049】シリコンとゲルマニウムとからなるP形又はN形半導体の球状結晶を製造する場合、受入器26に



1個のシリコンの原料体2aと1個のゲルマニウムの原料体2Aとを収容後、前記実施形態と同様に、原料体2a、2Aを電磁浮遊加熱装置12に供給して接触状に浮遊させた状態で加熱して一体的に熔融させて原料融液とする。それ以降は前記実施形態と同様である。このようにして、シリコンとゲルマニウムを混合した混晶半導体の球状結晶を製造することができる。尚、シリコンとゲルマニウムに限らず、種々の無機材料のうち2種類の無機材料からなる球状結晶や球状体を製造することができる。尚、2つのパーツフィード22、22Aに限らず、3つ以上のパーツフィードを設け、3種類以上の無機材料からなる球状結晶や球状体を製造することもできる。

#### 【0050】

【発明の効果】請求項1の発明によれば、第1工程～第5工程により、原料体を浮遊させた状態で熔融し、落下チューブ内を自由落下させながら凝固させて球状体にするので、不純物を含まない球状体、熱対流や浮力や沈降の影響無しに、成分が均一に分布した無機材料製の球状体（球状結晶を含む）を製造することができる。また、第2工程と第3工程とを経て原料融液を凝固させることにより、原料融液の内部から、或いは、内部と表面部の両方から凝固を開始させて、球状体の表面の一部に突起部や凹部が形成されるのを効果的に抑制することができる。う、球状体の内部歪みを小さくすることができる。また、原料体の表面に付着していた気泡が球状体の内部に混入するのを防止することもできる。

【0051】請求項2の発明によれば、請求項1と同様の効果を奏する他、無機材料がシリコンであるので、シリコンの球状結晶を製造することができ、その球状結晶の表面部に突起部が形成されるのを抑制して、真球状の球状結晶にすることができ、球状結晶の内部歪みを小さくすることができる。

【0052】請求項3の発明によれば、請求項1と同様の効果を奏する他、複数の種類の異なる無機材料からなる球状体（球状結晶を含む）であって成分が均一に分布した球状体を製造することができ、球状体の表面部に突起部や凹部が形成されるのを抑制でき、球状体の内部歪みを小さくすることができる。

【0053】請求項4の無機材料製の球状結晶の製造方法は、請求項3と同様の効果を奏するが、前記相互に異なる種類の無機材料がシリコンとゲルマニウムであるので、シリコン・ゲルマニウムの混晶半導体の球状結晶を製造することができる。

【0054】請求項5の無機材料製の球状体の製造装置によれば、落下チューブと、原料体供給手段と、浮遊加熱手段と、浮遊加熱手段の下側に所定距離以上離隔して配設され落下チューブ内を落下中の原料融液の表面部を加熱するアフターヒータとを備えているため、請求項1と同様に、表面部に突起部や凹部が無く真球状で、内部歪みが小さく、気泡の混入の無い無機材料製の球状体を

連続的に能率的に安価に量産することができる。

【0055】請求項6の無機材料製の球状体の製造装置によれば、請求項5と同様の効果を奏するが、落下チューブ内を真空状態にする真空化手段を設けたので、落下チューブ内を真空状態にして球状体を製造することができる。

【0056】請求項7の無機材料製の球状体の製造装置によれば、請求項6と同様の効果を奏するが、無機材料の種類に応じた所定のガスを落下チューブ内に供給するとともに、落下チューブ内に原料融液の落下方向へほぼ同速で流れるガス流を形成し且つ落下チューブ内に球状体の落下方向と反対方向へ流れるガス流を形成するガス供給手段を設けたので、落下チューブ内に所定のガスを供給して供給体を製造する場合に、ガス流から凝固中の原料融液に摩擦力が殆ど作用せず、原料融液は真球状に凝固する。そして、ガス流と凝固後の球状体との接触度合いが高くなり、ガスと球状体との反応や球状体の冷却が促進される。

【0057】請求項8の無機材料製の球状体の製造装置によれば、請求項7と同様の効果を奏するが、落下チューブの下端に臨み、その下端外へ落下した球状体を冷却液内に収容する冷却液槽を設けたので、球状体が衝撃で損傷するのを防止するとともに、球状体を冷却することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施形態に係る無機材料製の球状体製造装置の全体構成図である。

【図2】前記製造装置の電磁浮遊加熱装置と赤外線ヒータの構成図である。

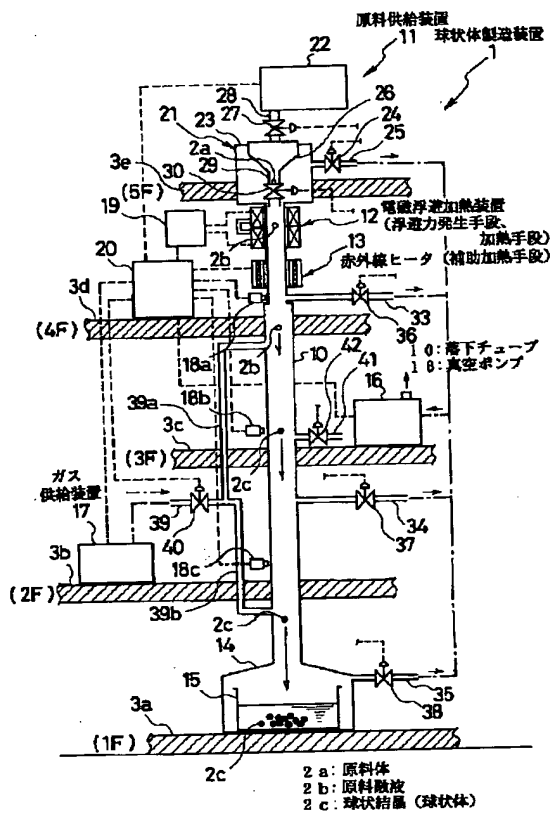
【図3】（a）は電磁浮遊加熱後の原料融液の温度分布図、（b）は赤外線ヒータ直前の原料融液の温度分布図、（c）は赤外線ヒータで加熱後の原料融液の温度分布図、（d）は凝固直前の原料融液の温度分布図である。

【図4】別実施形態に係る無機材料製の球状体製造装置の全体構成図である。

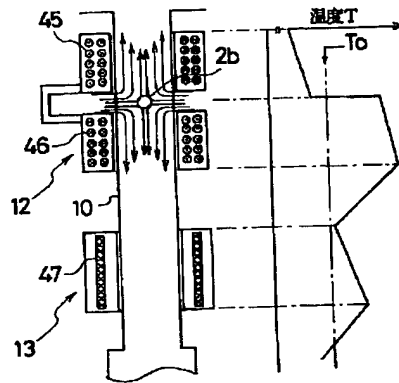
#### 【符号の説明】

1, 1A	球状体製造装置
2a, 2A	原料体
2b	原料融液
2c	球状結晶（球状体）
10	落下チューブ
11	原料供給装置
12	電磁浮遊加熱装置（浮遊力発生手段、加熱手段、浮遊加熱手段）
13	赤外線ヒータ（補助加熱手段、アフターヒータ）
16	真空ポンプ
17	ガス供給装置

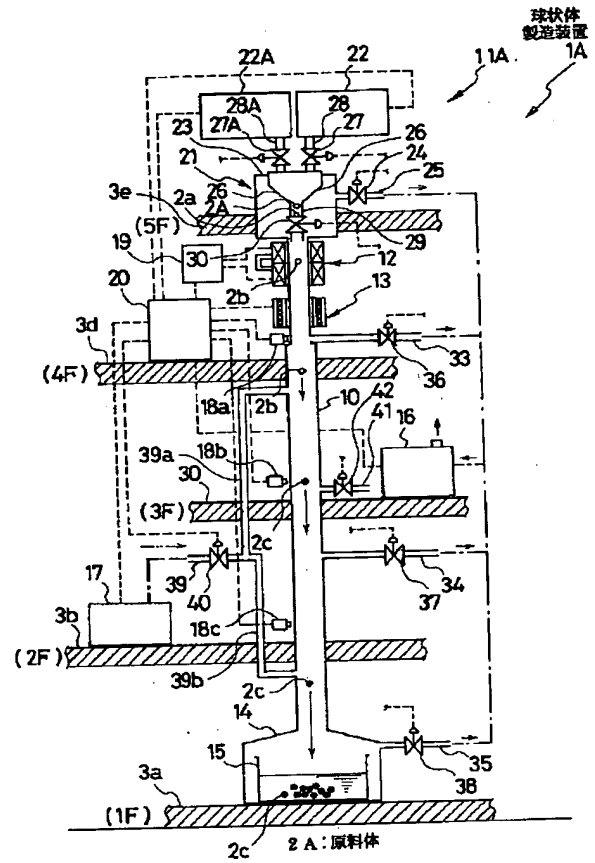
【図1】



【図2】



【図4】



【図3】

